

Translation of Patent Publication sho63-36624 (2)

Scope of claim

1 An undercoating agent for coating formed products of polyolefin, of which adhesive ingredient is a chlorinated product of modified propylene · 1-butene copolymer [C] having a range of chlorine content being 10 to 35 weight % wherein the chlorinated product of modified propylene · 1-butene copolymer [C] is prepared by further chlorinating a modified propylene 1-butene copolymer [B] prepared by graft-polymerizing propylene · 1-butene copolymer [A] of propylene ingredient unit being more 70 mol %, of 1-butene ingredient unit being less than 30 mol % and of intrinsic viscosity $[\eta]$ being 0.6 to 10 dl/g with an unsaturated carboxylic acid or its anhydride in a range of carboxyl content per 1g of graft-modified product being 5 to 150 mg.

⑫ 特 許 公 報 (B 2)

昭 63 - 36624

②

⑬ Int. Cl. 4	識別記号	庁内整理番号	⑭ 公告 昭和63年(1988)7月21日
C 08 J 7/04	C E S	F - 7446 - 4F	
C 09 D 3/733		7224 - 4J	
// C 08 F 8/46		7167 - 4J	
C 08 J 255/02	1 0 3	6681 - 4J	
C 08 J 5/12	C E S	8720 - 4F	発明の数 1 (全6頁)

⑮ 発明の名称 ポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤

⑯ 特 願 昭58-204888

⑰ 公 開 昭60-99138

⑱ 出 願 昭58(1983)11月2日

⑲ 昭60(1985)6月3日

⑳ 発 明 者 岸 村 小 太 郎 広島県大竹市御園1丁目3番8号
 ㉑ 発 明 者 長 野 理 一 郎 広島県佐伯郡廿日市町阿品台四丁目19番19号
 ㉒ 出 願 人 三井石油化学工業株式 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号
 会社

㉓ 代 理 人 弁理士 鈴木 俊一郎

審 査 官 松 井 佳 章

㉔ 参 考 文 献 特開 昭57-36128 (J P, A) 特開 昭59-166534 (J P, A)

特公 昭50-10916 (J P, B 1) 特公 昭44-12427 (J P, B 1)

1

2

㉕ 特許請求の範囲

1 プロピレン成分単位が70モル%以上、1-ブテン成分単位が30モル%以下であつて極限粘度
 [η] が0.6ないし10 dl/gであるプロピレン・1
 ーブテン共重合体 [A] に不飽和カルボン酸また
 はその無水物を、グラフト変性物1 g当りのカル
 ポキシル基含有量が5ないし150mgの範囲で、グ
 ラフト共重合させた変性プロピレン・1-ブテン
 共重合体 [B] を、さらに塩素化することによつ
 て得られる塩素含有量が10ないし35重量%の範囲
 の変性プロピレン・1-ブテン共重合体塩素化物
 [C] を接着成分とするポリオレフィン成形品の
 塗装用下塗剤。

発明の詳細な説明

本発明はポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤
 に関する。さらに詳しくは、プロピレン系ポリマ
 ーに不飽和カルボン酸またはその無水物をグラフ
 ト共重合させたグラフト化プロピレン系ポリマー
 (変性プロピレン系ポリマーともいう) を塩素化
 することにより得られるグラフト化プロピレン系
 ポリマーの塩素化物を接着成分とする接着性、耐
 溶剤性、耐水性、耐ガソリン性に優れたポリオレ
 フィン用成形品の塗装用下塗剤に関するものであ
 る。

ポリプロピレン等のポリオレフィン成形品の表
 面に塗料や他の樹脂層等を形成して、その付加価
 値を高めることが行われているが、ポリオレフィ
 ンからなる成形品は極性が小さく一般塗料との付
 着性が悪いので、予めクロム酸処理、火炎処理、
 溶剤処理などによつてポリオレフィン成形品の表
 面の塗料に対する付着性を改良することが知られ
 ている。

しかしこれらの方法では複雑な処理を要した
 り、腐蝕性の薬品を使用するので危険を伴い、ま
 た安定した付着性を付与するためには厳しい工程
 管理を必要とするというような欠点を有してい
 た。

これらの欠点を改良する有効な手段の1つとし
 て成形品表面を下塗剤で処理する方法があり、数
 種の下塗剤が提案されている。代表的な下塗剤と
 して塩素化ポリプロピレンを接着成分としてこれ
 を有機溶剤に溶解してなる下塗剤が挙げられるが、
 これは塩素化ポリプロピレンと塗料との付着性が
 不十分であり実用性に欠ける。

そこでカルポキシル基を含むポリプロピレンの
 塩素化物を接着成分とした下塗剤の製法が提案さ
 れている(特公昭50-10916号公報)が、この下
 塗剤によつて得られる塗装被膜は耐水性・耐ガソ

3

リン性に欠けるため、これらの性能が要求される分野には使用することができない。また特公昭50-4231には、ポリプロピレン成形品に接着性を良好ならしめるため、特定のハロゲン化ポリプロピレンにカルボキシル基等を含有するモノマーをグラフトさせた重合物を適用することが提案されている。しかしこの方法による重合物にはゲルが含まれることが多く、塗装被膜の外観も悪くなる欠点があるほか、前述の耐ガソリン性にも劣るものである。同様のことは特開昭58-118809に開示された方法によるプライマーにも言えることである。

本発明者らは上記の欠点のない下塗剤用接着成分を探索した結果、特定のプロピレン系ポリマーに、特定量の不飽和カルボン酸またはその無水物をグラフトした変性プロピレン系ポリマーをさらに塩素化することにより得られる変性プロピレン系ポリマー塩素化物を接着成分に使用した下塗剤が、ポリオレフィンおよび塗料との付着性に優れ、かつ耐水性および耐ガソリン性等に優れた塗装被膜を与えることを見出し、本発明に到達した。

すなわち本発明は、プロピレン成分単位が70モル%以上、1-ブテン成分単位が30モル%以下であつて極限粘度 $[\eta]$ が0.6ないし10dl/gであるプロピレン・1-ブテン共重合体[A]に不飽和カルボン酸またはその無水物を、グラフト変性物1g当りのカルボキシル基含有量が5ないし150mgの範囲で、グラフト共重合させた変性プロピレン・1-ブテン共重合体[B]を、さらに塩素化することによつて得られる塩素含有量が10ないし35重量%の範囲の変性プロピレン・1-ブテン共重合体塩素化物[C]を接着成分とするポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤を要旨とするものである。

以下、本発明を詳しく説明する。

本発明で用いるポリプロピレン系ポリマー[A]の組成は、プロピレン成分単位が70モル%以上、1-ブテン成分単位が30モル%以下である。該ポリマー[A]には上記成分単位のほか、アクリル酸、アクリル酸エステル、酢酸ビニル、ビニルアルコール、塩化ビニル等の共重合性モノマーを含んでいても構わない。

プロピレン・1-ブテン共重合体[A]は各構

4

成成分単位のランダム共重合体、各種ブロック共重合体でもよい。

プロピレン・1-ブテン共重合体[A]の極限粘度 $[\eta]$ は0.6ないし10dl/gであることが必要であり、好ましくは1ないし5dl/gである。また該プロピレン・1-ブテン共重合体[A]の190℃における熔融粘度は好ましくは7000cp以上、さらに好ましくは50000cp以上である。プロピレン・1-ブテン共重合体[A]の成分組成が上記必須範囲を外れるものおよび極限粘度 $[\eta]$ が0.6未満のものを用いて本発明と同様の変性を行い、得られた変性物を下塗剤として用いても塗装被膜の耐水性や耐ガソリン性が劣るようになる。また、極限粘度 $[\eta]$ が10を超えるものを用いて得られた変性物は適量の溶剤に溶かしても粘度が高過ぎて塗布しにくいばかりか、形成される被膜の接着性にも劣るようになる。

前記プロピレン・1-ブテン共重合体[A]にグラフトする不飽和カルボン酸およびその無水物(以下これらを「モノマー」ともいう)としては、たとえばアクリル酸、メタクリル酸などの不飽和モノカルボン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、アリルコハク酸、メサコン酸、グルタコン酸、ナジツク酸、メチルナジツク酸、テトラヒドロフタル酸、メチルヘキサヒドロフタル酸などの不飽和ジカルボン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、無水アリルコハク酸、無水グルタコン酸、無水ナジツク酸、無水メチルナジツク酸、無水テトラヒドロフタル酸、無水メチルテトラヒドロフタル酸などの不飽和ジカルボン酸無水物などがあげられ、これらの2成分以上の混合成分であつても差し支えない。これらの不飽和カルボン酸あるいはその酸無水物のうちでは、マレイン酸、無水マレイン酸、ナジツク酸または無水ナジツク酸を使用することが好ましい。

プロピレン・1-ブテン共重合体[A]に対するモノマーのグラフト量は変性により得られるグラフト変性物[B]1g当りのカルボキシル基含有量が5ないし150mg、好ましくは10ないし100mgである。グラフト量が5mg/g変性物未満では塗料等との付着性が不十分であり、また150mgを超えるとグラフト変性プロピレン系ポリマー[B]の $[\eta]$ 、ひいては塩素化物の $[\eta]$ が小さくな

5

り凝集力が低下するため、塗装被膜の耐水性、耐ガソリン性が悪くなる。

プロピレン・1-ブテン共重合体〔A〕に前記モノマーをグラフト共重合する方法としては種々公知の方法、たとえばプロピレン・1-ブテン共重合体〔A〕を有機溶媒に溶解し、前記モノマーおよびラジカル発生剤を添加して加熱攪拌することによりグラフト共重合する方法、あるいは各成分を押出機に供給してグラフト共重合する方法等が挙げられる。

グラフト反応に用いられるラジカル発生剤は、プロピレン・1-ブテン共重合体〔A〕と前記モノマーとの反応を促進するものであればいずれでもよいが、とくに有機ペルオキシド、有機ペルエステルが好ましい。具体的には、ベンゾイルペルオキシド、ジクロロベンゾイルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ペルオキシベンゾエート)ヘキシン-3, 1, 4-ビス(tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、ラウロイルペルオキシド、tert-ブチルペルアセテート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3, 2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン、tert-ブチルペルベンゾエート、tert-ブチルペルフェニルアセテート、tert-ブチルペルイソブチレート、tert-ブチルペルsec-オクトエート、tert-ブチルペルtert-ブチルペルジエチルアセテートがあり、その他アゾ化合物、たとえばアゾビス-イソブチルニトリル、ジメチルアゾイソブチレートがある。これらのうちではジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3, 2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン、1, 4-ビス(tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼンなどのジアルキルペルオキシドが好ましい。

これらの変性方法のうちでは、有機溶媒を用いる方法が好んで用いられる。有機溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン等の脂肪族炭化水素、クロロベンゼン、四塩化炭素

6

等の塩素化炭化水素などを挙げることができるが、とくに芳香族系炭化水素を用いるのが好ましい。また加熱温度は通常100ないし160℃であり、反応時間は通常2ないし10時間である。モノマーのグラフト量は主にモノマーの供給量によつてコントロールすることができる。またモノマーのグラフト量は、ポリマー中の酸素含量の定量によつて測定することができる。

前記の方法で得られたグラフト変性プロピレン系ポリマー〔B〕の塩素化は、溶媒中へ完全溶解させた均一溶媒系で実施することができる。溶媒としては、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、テトラデカン、灯油のような脂肪族炭化水素、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、シクロオクタン、シクロドデカンのような脂環族炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、エチルトルエン、トリメチルベンゼン、シメン、ジイソプロピルベンゼンなどの芳香族炭化水素、クロロベンゼン、プロモベンゼン、o-ジクロロベンゼン、四塩化炭素、四臭化炭素、クロロホルム、プロモホルム、トリクロロエタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエタン、テトラクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素などを例示することができる。これらの中ではとくにハロゲン化炭化水素が好適である。

以上のような溶媒に溶かしたグラフト変性プロピレン・1-ブテン共重合体〔B〕の均一溶液を良く攪拌しながら、所定の塩素含量に達するまで塩素ガスを加えて反応を行なう。塩素化反応を実施する際、反応を効率的に進行させる目的でラジカル発生剤を使用したり紫外線や可視光線を照射することもできる。ラジカル発生剤としては、プロピレン系ポリマーをグラフト変性する際に例示したラジカル発生剤を使用することができる。しかし、ラジカル発生剤の添加や紫外線・可視光線の照射を行わずに塩素化物を得る方法も採用できる。塩素化反応の温度は通常約50ないし120℃であり、反応時間は約0.5ないし5時間である。

塩素化物の塩素含量は10~35重量%好ましくは20~30重量%である。塩素含量が10重量%未満では変性プロピレン・1-ブテン共重合体塩素化物の溶剤に対する溶解性が不十分であり、均一な下塗剤が得られず下塗剤の被膜も不均一となる。

また塩素含量が35重量%を超える塩素化物を下塗剤に使用した場合には、塗料等の上塗剤を施した後の被膜の耐ガソリン性が低下する。さらに、塩素化物の塩素含量が高過ぎると、ポリオレフィン成形品に対する接着性が低下するという欠点も有する。塩素化物〔C〕中の塩素含量はたとえば塩素化物〔C〕約10mgを酸素フラスコ中で完全に燃焼させ、塩素部分を塩化水素として水中に吸収させる。次いで、この塩化水素水溶液にAgNO₃を加え、塩化銀の沈澱を回収し、塩化銀の蛍光X線スペクトルより該塩素化物の塩素含有率(重量%)を求めることができる。

本発明のポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤には該グラフト変性プロピレン・1-ブテン共重合体の塩素化物〔C〕の他に、必要に応じて各種樹脂、可塑剤、安定剤、顔料、粘度調節剤、チクソ性改良剤、タレ防止剤などの添加剤等を配合することが可能である。これらの添加剤の配合割合は適宜である。本発明のポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤を溶液型とするために使用される溶剤として具体的には、たとえばトルエン、キシレン、ベンゼンなどの芳香族炭化水素、シクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、シクロヘキセンなどの脂環式炭化水素、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン類、酢酸エチル、酢酸ブチル、セロソルブアセテートなどのエステル類、四塩化炭素、トリクロロエチレン、パークロロエチレン、クロロホルムなどのハロゲン化炭化水素、テトラヒドロフラン、エチルエーテルなどのエーテル類、ジメチルホルムアミドなどのアミドなどを例示することができる。

本発明の下塗剤によつて表面を処理したポリオレフィン成形品は、静電塗装、吹付塗装、はけ塗りなどの方法で、塗料が塗布される。これらの塗料は下塗りした後、上塗りする方法で塗布してもよい。使用される塗料には特に限定されないが、とくに塗料付着性の高い塗膜を必要とする場合には、溶剤型熱可塑性アクリル樹脂塗料、溶剤型熱硬化性アクリル樹脂塗料、アクリル変性アルキッド樹脂、エポキシ樹脂塗料、ポリウレタン塗料を用いることが好ましい。

これらの塗料が塗布されたポリオレフィン成形

品は、ニクロム線、赤外線、高周波加熱などの通常の方法で、塗膜を硬化させるが、硬化条件はポリオレフィン成形品の材質、形状、塗料の性状などによつて決められる。

5 本発明の下塗剤による処理が好適なポリオレフィン成形品としてはたとえば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、スチレン、 α -メチルスチレンなどの単独または二種以上の共重合体、あるいはこれらと重合可能な他のモノマーとの共重合体の成形品が挙げられる。これらのポリオレフィン成形品の中では、とくにポリプロピレン系成形品に本発明の下塗剤が好んで用いられる。これらの重合体には、成形前に、ポリオレフィン以外の重合体のほか通常用いられる種々の添加剤、たとえば、耐熱安定剤、耐候安定剤、帯電防止剤、滑剤、スリップ剤、核剤、難燃剤、油剤、顔料あるいは染料、ガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウム繊維、ウオラストナイト、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、タルク、ガラスフレーク、硫酸バリウム、クレー、カオリン、微粉末シリカ、マイカ、硅酸カルシウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム等の無機あるいは有機の補強材、充填材を種々の方法でブレンドしておいてもよい。本発明の下塗剤が適用される成形品の成形方法は、一般にポリオレフィン系樹脂の成形に用いられる押出成形、中空成形、射出成形、圧縮成形、回転成形など種々の方法が挙げられる。

また本発明の下塗剤はポリオレフィン成形物の塗装だけではなく、接着剤や各種ワニス類等に対する下塗剤およびアルミ等の金属蒸着用の下塗剤としても使用できる。

以下に実施例をもつて本発明を具体的に説明する。

実施例 1

(1) プロピレン・1-ブテン共重合体の無水マレイン酸変性

デカリン中135°Cで測定した極限粘度 $[\eta]$ が1.9dl/gのプロピレン・1-ブテン共重合体を用い、25重量%のトルエン溶液として125°C、6時間でジクミルペルオキシドをラジカル発生剤として無水マレイン酸のグラフト反応を行つた。反応混合物に大過剰のアセトンを加えてポリマーを

析出・汙別し、アセトンで繰返し洗浄した後真空乾燥することにより、無水マレイン酸含量3.0重量%（カルボキシル基含量28mg/g変性物）の無水マレイン酸グラフトプロピレン・1-ブテン共重合体を得た。

(2) 変性プロピレン・1-ブテン共重合体の塩素化

上記の方法により得た無水マレイン酸グラフトプロピレン・1-ブテン共重合体をクロロベンゼン溶媒中110°Cで完全に溶解させ、同温度にて光を遮断してこれに塩素ガスを導入し、塩素含量が25重量%になるまで塩素化を行った。反応時間はおよそ2時間であつた。反応混合物に大過剰のメタノールを加えてポリマーを析出・汙別し、メタノールで繰返し洗浄した後、窒素気流中で真空乾燥することにより無水マレイン酸グラフトプロピレン・1-ブテン共重合体の塩素化物を得た。

(3) 下塗剤の調製、性能等

こうして得られた塩素化物10gを100mlのトルエンに溶解して調製した溶液25°Cにおける均一性を目視判定することにより溶解性を調べた。

結果を表1に示す。

次に、上記塩素化物のトルエン溶液を下塗剤に用いて以下の方法でポリプロピレンの塗装を行った。

ポリプロピレン（商品名 三井石油化学ポリプロ®SJ313）の射出成形板の表面を1, 1, 1-トリクロロエタン蒸気で30秒間洗浄・脱脂した後、これに塩素化物の50g/lトルエン溶液をスプレー塗布し、室温下で約5分間風乾し、下塗被膜を形成する。次いでウレタン系塗料（日本ビケミカル社製 商品名 R-230ピュアーレッド）をスプレー塗布し、エアオープン中80°Cで30分

間焼付乾燥した。得られた塗装物を室温で3日間放置後、下記の各付着性を試験した。

結果を表2に示す。

〔初期付着性〕

- 5 基盤目試験（JIS K5400 6.15）により試験した。

〔耐水付着性〕

塗装物を40°Cの温水に1000時間浸漬後、基盤目試験により試験した。

- 10 〔耐ガソリン付着性〕

塗装物を25°Cのレギュラー・ガソリンに24時間浸漬後、基盤目試験により試験した。

参考例 1～6

- 15 実施例1において、表1に記載したようなプロピレン系ポリマーを用いた以外は実施例1と同様にした。

結果を表1および表2に示す。

比較例 7

- 20 デカリン中135°Cで測定した極限粘度 $[\eta]$ が1.9dl/gのポリプロピレンを実施例1と同様の方法で、塩素含量が25重量%になるまで塩素化を行つて得た塩素化ポリプロピレンを用い、次いで実施例1と同様の方法により無水マレイン酸を2.3重量%グラフトしたところ、塩酸の発生が認められ反応液は茶色に着色し、一部ゲル化した。

こうして得た無水マレイン酸グラフト塩素化ポリプロピレンのトルエン溶液を下塗剤に用いて実施例1の方法でポリプロピレンの塗装を行い、各試験を行つた。

- 30 結果を表1および表2に示す、ただし、グラフトモノマー含量や塩素含量は実施例や他の比較例と同じ基準により算出した値を示した。

表 1

実験例	原料プロピレン・1-ブテン共重合体				グラフト変性プロピレン・1-ブテン共重合体			塩素化物	溶解性*
	プロピレン含 (モル%)	コモノマ —	$[\eta]$ (dl/g)	η 190°C (cp)	グラフトモノマ —	モノ マ— 含量 (重量%)	カルボ キシル 基含量 (mg/g)	塩素 含量 (重量%)	
実施例 1	75	1-ブテン	1.7	1.1×10^6	無水マレイン酸	3.6	33	12	◎
比較例 1	100	—	0.5	4×10^3	無水マレイン酸	3.3	30	18	○
// 2	60	エチレン	2.0	1.4×10^6	無水マレイン酸	3.2	29	13	◎
// 3	100	—	1.9	2×10^6	無水マレイン酸	0.3	3	25	◎
// 4	100	—	1.9	2×10^6	無水マレイン酸	18.0	165	28	◎
// 5	100	—	1.9	2×10^6	無水マレイン酸	3.0	28	8	×
// 6	100	—	1.9	2×10^6	無水マレイン酸	3.0	28	40	◎
// 7	100	—	1.9	2×10^6	無水マレイン酸	2.3	21	25	△

* 100g/1 トルエン溶液の25°Cでの状態

◎=均一・透明

○=均一・濁り有り

△=一部不溶物有り

×=不溶解

表 2

実験例	塗膜の付着性*		
	初期付着 性	耐水付着 性	耐ガソリン 付着性
実施例 1	◎	◎	○
比較例 1	○	△	×
// 2	○	△	×
// 3	○	×	×
// 4	○	×	×
// 6	○	△	×
// 7	◎	○	△

25 * 基盤目試験

◎=100/100

○=99~90/100

△=89~50/100

×=49~0/100

30

35

平成 3. 5. 27 発行

第 3 部門(3)

特許法第 6 4 条の規定による補正の掲載

平 3. 5. 27 発行

昭和 5 8 年特許願第 2 0 4 8 8 8 号 (特公昭 6 3 - 3 6 6 2 4 号、昭 6 3. 7. 2 1 発行の特許公報 3(3)- 6 6 [8 2 9] 号掲載) については特許法第 6 4 条の規定による補正があつたので下記のとおり掲載する。

Int. Cl. ⁵	特許第 1 6 0 0 1 3 9 号 識別記号	庁内整理番号
C 08 J 7/04	C E S	7446-4 F
C 09 D 123/28	P F A	7107-4 J
151/06	P G X	7142-4 J
5/00	P P F	7038-4 J

記

- 1 「特許請求の範囲」の項を「1 プロピレン成分単位が 7 0 モル%以上、1 - ブテン成分単位が 3 0 モル%以下であつて極限粘度 $[\eta]$ が 1. 0 ないし 1 0 dl/g であるとともに 1 9 0 °C における熔融粘度が 5 0 0 0 0 c p 以上であるプロピレン・1 - ブテン共重合体 [A] に不飽和カルボン酸またはその無水物を、グラフト変性物 1 g 当りのカルボキシル基含有量が 5 ないし 1 5 0 mg の範囲で、グラフト共重合させた変性プロピレン・1 - ブテン共重合体 [B] を、さらに塩素化することによつて得られる塩素含有量が 1 0 ないし 3 5 重量% の範囲の変性プロピレン・1 - ブテン共重合体塩素化物 [C] を接着成分とするポリオレフィン成形品の塗装用下塗剤。」と補正する。
- 2 第 3 欄 2 5 行 ~ 2 6 行「極限…る」を「極限粘度 $[\eta]$ が 1. 0 ないし 1 0 dl/g であるとともに 1 9 0 °C における熔融粘度が 5 0 0 0 0 c p 以上である」と補正する。
- 3 第 4 欄 4 行、1 1 行「0. 6」を「1. 0」と補正する。
- 4 第 4 欄 7 行 ~ 8 行「1 9 0 °C …である。」を「1 9 0 °C における熔融粘度は好ましくは 5 0 0 0 0 c p 以上である。」と補正する。